

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード <sup>8</sup> (参考)
F 25 J 1/00		F 25 J 1/00	B
F 25 B 7/00		F 25 B 7/00	D
F 25 J 3/02		F 25 J 3/02	B

審査請求 有 請求項の数17 OL (全 16 頁)

(21)出願番号 特願平11-350253  
 (22)出願日 平成11年12月9日 (1999.12.9)  
 (31)優先権主張番号 09/208562  
 (32)優先日 平成10年12月9日 (1998.12.9)  
 (33)優先権主張国 米国 (US)

(71)出願人 591035368  
 エア・プロダクツ、アンド、ケミカル  
 ス、インコーポレーテッド  
 AIR PRODUCTS AND CHEMICALS INCORPORATED  
 D  
 アメリカ合衆国、18195-1501、ペンシル  
 バニア州、アレンタウン、ハミルトン、ブ  
 ールバード、7201  
 (74)代理人 100077517  
 弁理士 石田 敬 (外4名)

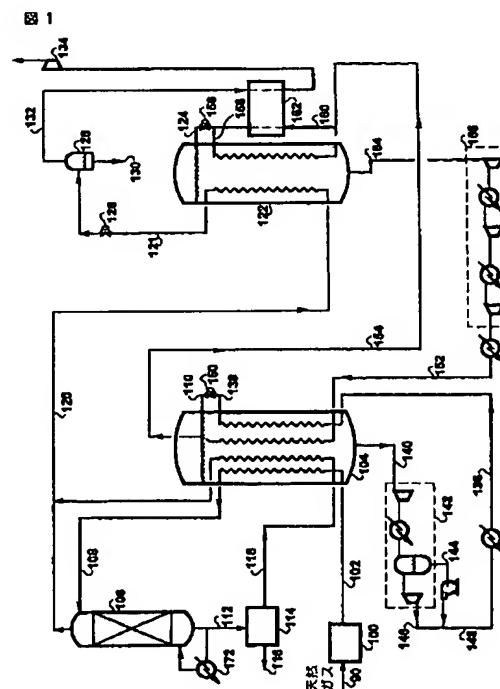
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 ガス液化のための2つの混合冷媒を使用するサイクル

(57)【要約】

【課題】 単純で且つ必要とされる設置面積が小さく、特に船、はしけ、又は沖合のプラットフォームの施設に適当なガスの液化方法及び装置を提供する。

【解決手段】 供給物102の予備冷却、比較的低温用の冷媒152の予備冷却、及び比較的高温用の冷媒136の冷却を、1つの本質的に一定の圧力で気化する比較的高温用の冷媒との熱交換によって1つの熱交換器104で行うことを含み、供給物の予備冷却を、比較的低温用の冷媒の予備冷却及び比較的高温用の液体冷媒の冷却と組み合わせるので別個の供給物予備冷却熱交換器を必要としない、ガスの液化方法及び装置とする。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 加圧供給ガスの液化方法であって、

(a) 第1熱交換領域において、気化する第1混合冷媒との間接熱交換によって前記加圧供給ガスを冷却し、ここで、この第1混合冷媒は本質的に一定の第1圧力で気化させて、冷却された前記供給ガス及び第1混合冷媒蒸気をもたらし、

(b) 第2熱交換領域において、気化する第2混合冷媒との間接熱交換によって前記冷却された供給ガスを更に冷却して凝縮させ、ここで、この第2混合冷媒は本質的に一定の第2圧力で気化させて、液体生産物及び第2混合冷媒蒸気をもたらし、

(c) 前記第1混合冷媒蒸気を圧縮し、そして冷却し、凝縮させ、得られる前記圧縮された第1混合冷媒蒸気をフラッシュさせて気化する第1混合冷媒を提供し、そして

(d) 前記第2混合冷媒蒸気を圧縮し、そして冷却し、凝縮させ、得られる前記圧縮された第2混合冷媒蒸気をフラッシュさせて気化する第2混合冷媒を提供し、ここで、前記第2混合冷媒蒸気の冷却及び凝縮のための寒冷の少なくとも一部を、前記第1熱交換領域において気化する前記第1混合冷媒液との間接熱交換によって提供する、ことを含む加圧供給ガスの液化方法。

【請求項 2】 (c) における前記第1混合冷媒蒸気の圧縮を、少なくとも1つの中間2相冷媒流れを発生させる少なくとも2つの圧縮段階で行い、この中間2相冷媒流れを、中間冷媒蒸気と中間冷媒液とに分け、この中間冷媒蒸気を圧縮して更に圧縮された冷媒をもたらし、また、この中間冷媒液をポンプ送出して更に加圧された冷媒液をもたらし、これらの更に圧縮された冷媒と更に加圧された冷媒液とを組み合わせ、そして得られる組み合わされた第1混合冷媒を冷却し、凝縮させ、随意に過冷却し、そしてフラッシュさせて (a) の気化する第1混合冷媒を提供する請求項 1 に記載の加圧供給ガスの液化方法。

【請求項 3】 圧縮の後で冷却して凝縮させる前記第1混合冷媒蒸気のための寒冷の少なくとも一部を、第1熱交換領域において気化する前記第1混合冷媒液との間接熱交換によって提供する請求項 1 に記載の加圧供給ガスの液化方法。

【請求項 4】 前記加圧供給ガスからメタンよりも重い炭化水素を除去することを更に含む方法であって、

(1) 冷却された前記供給ガスを第1の箇所で蒸留塔に導入し、そしてこの蒸留塔からメタンに富む塔頂流れとメタンよりも重い成分の塔底流れとを引き出し、そして

(2) 前記塔底流れを分離して、炭素原子数が4までの成分を含む第1炭化水素流れと、炭素原子数が4よりも多い成分を含む第2炭化水素流れとを得る、ことを含む請求項 1 に記載の加圧供給ガスの液化方法。

【請求項 5】 圧縮の後の前記第2混合冷媒蒸気の冷却

と凝縮のための寒い一部を、前記第2熱交換領域で気化する第2混合冷媒との間接熱交換によって少なくとも部分的に提供する請求項 1 に記載の加圧供給ガスの液化方法。

【請求項 6】 加圧供給ガスの液化方法であって、圧縮の後の前記第2混合冷媒蒸気を、前記第1熱交換領域での間接熱交換によって冷却して、この第1熱交換領域から第1温度で引き出し、得られる冷却された前記第2混合冷媒流れを、前記第2熱交換領域に導入して、ここでの間接熱交換によって更に冷却し、

前記第2熱交換領域から前記第2混合冷媒蒸気を、第1温度よりも低い第2温度で引き出し、そして得られる更に冷却された前記第2混合冷媒蒸気を予備加熱することなく直接に圧縮する、請求項 1 に記載の加圧供給ガスの液化方法。

【請求項 7】 加圧供給ガスを (b) において第2熱交換領域での間接熱交換によって更に冷却し凝縮させる前に、

(1) 前記加圧供給ガスを冷却し、得られる冷却された前記供給ガスを蒸留塔に導入し、そしてこの蒸留塔からメタンに富む塔頂流れとメタンよりも重い成分を含む塔底流れとを引き出し、

(2) 前記塔底流れを分離して、炭素原子数が4までの成分を含む第1炭化水素流れと、炭素原子数が4よりも多い成分を含む第2炭化水素流れとを得て、

(3) 前記第1熱交換領域における間接熱交換によって前記第1炭化水素流れを冷却し、そして

(4) (3) で得られる冷却された前記第1炭化水素流れの少なくとも一部を、(1) の蒸留塔のための還流として使用する、ことによって、メタンよりも重い炭化水素を前記加圧供給ガスから除去することを更に含む請求項 1 に記載の加圧供給ガスの液化方法。

【請求項 8】 前記加圧供給ガスの一部を、第1の箇所の下方の第2の箇所で前記蒸留塔に導入する請求項 4 に記載の加圧供給ガスの液化方法。

【請求項 9】 (c) における前記第1混合冷媒蒸気の圧縮を、中間の圧縮された冷媒を発生させる少なくとも2つの圧縮段階で行い、この中間の圧縮された冷媒を冷却して部分的に凝縮させ、そして中間の冷媒蒸気と中間の冷媒液とに分離し、この中間の冷媒蒸気を圧縮して更に圧縮された冷媒をもたらし、この更に圧縮された冷媒を冷却し、凝縮させ、随意に過冷却し、そしてフラッシュさせて、(a) の気化する前記第1混合冷媒を提供し、また、この中間の冷媒液を過冷却して本質的に一定の圧力でフラッシュさせて第1熱交換領域で追加の寒冷をもたらす請求項 1 に記載の加圧供給ガスの液化方法。

【請求項 10】 圧縮の後の前記第2混合冷媒蒸気の冷却及び凝縮を、前記第1熱交換領域における間接熱交換によって行って、中間の第2混合冷媒蒸気と中間の第2

混合冷媒液とを含む部分を凝縮した第2混合冷媒流れをもたらし、更に、

(1) 前記部分的に凝縮した第2混合冷媒流れを分離して、中間の第2混合冷媒蒸気と中間の第2混合冷媒液とをもたらし、

(2) 前記中間の第2混合冷媒蒸気を冷却し、凝縮させ、隨意に過冷却し、そしてフラッシュさせて、前記気化する第2混合冷媒を提供し、そして

(3) 前記中間の第2混合冷媒液を過冷却して本質的に一定の前記第2圧力でフラッシュさせて、前記第2熱交換領域において追加の寒冷を発生させる、請求項1に記載の加圧供給ガスの液化方法。

【請求項11】 加圧供給ガスの液化装置であって、

(a) 前記加圧供給ガスを冷却し、圧縮された第1混合冷媒を冷却し、且つ圧縮された第2混合冷媒を冷却する第1熱交換手段であって、本質的に一定の第1圧力で気化する前記第1混合冷媒との間接熱交換によって、この冷却を少なくとも部分的に行い、この冷却が、冷却された前記加圧供給ガス、液化した前記第1混合冷媒、及び冷却された前記圧縮第2混合冷媒をもたらし、また、前記気化する第1混合冷媒が第1混合冷媒蒸気をもたらす第1熱交換手段、

(b) 前記第1混合冷媒蒸気を圧縮して、圧縮された第1混合冷媒を提供する第1圧縮手段、

(c) 前記液化した第1混合冷媒をフラッシュさせて、前記気化する第1混合冷媒を提供する減圧手段、

(d) 前記冷却された供給ガスを更に冷却して凝縮させ、且つ前記冷却された圧縮第2混合冷媒を更に冷却して液化する第2熱交換手段であって、本質的に一定の第2圧力で気化する第2混合冷媒との間接熱交換によって、この冷却を少なくとも部分的に行い、この冷却が液体生産物と液化した第2混合冷媒とをもたらし、また、前記気化する第2混合冷媒が第2混合冷媒蒸気をもたらし、

(e) 前記第2混合冷媒蒸気を圧縮して、圧縮された第2混合冷媒を提供する第2圧縮手段、

(f) 液化した前記第2混合冷媒をフラッシュさせて、前記気化する第2混合冷媒を提供する減圧手段、及び

(g) 配管手段であって、

前記加圧供給ガスを前記第1熱交換手段に導入し、冷却された前記供給ガスを前記第1熱交換手段から前記第2熱交換手段に移動させ、

前記液体生産物を前記第2熱交換手段から引き出し、前記第1混合冷媒蒸気を前記第1熱交換手段から前記第1圧縮手段に移動させ、また、得られる圧縮された前記第1混合冷媒蒸気を前記第1圧縮手段から前記第1熱交換手段に移動させ、

冷却された前記圧縮第2混合冷媒を前記第1熱交換手段から前記第2熱交換手段に移動させ、そして前記第2混合冷媒蒸気を前記第2熱交換手段から前記第2圧縮手段

に移動させ、そして得られる圧縮された前記第2混合冷媒蒸気を前記第2圧縮手段から前記第1熱交換手段に移動させる、配管手段、を具備している加圧供給ガスの液化装置。

【請求項12】 加圧供給ガスの液化装置であって、前記第1圧縮手段が、少なくとも2つの圧縮機段階及びそれに関連する配管手段であって、そのうちの1つの段階が中間の圧縮された冷媒をもたらす少なくとも2つの圧縮機段階及びそれに関連する配管手段、

中間冷却器であって、前記中間の圧縮された冷媒を冷却して部分的に凝縮させ、それによって2相の中間冷媒をもたらす中間冷却器、

分離装置及びそれに関連する配管手段であって、前記2相の中間冷媒を、中間冷媒蒸気と中間冷媒液とに分離する分離装置及びそれに関連する配管手段、

追加の圧縮機段階であって、前記中間冷媒蒸気を圧縮して更に圧縮された冷媒をもたらす追加の圧縮機段階、

前記中間冷媒液を加圧するポンプ送出手段及びそれに関連する配管手段、並びに得られる加圧された前記中間冷媒液と前記更に圧縮された冷媒とを組み合わせて、

(a) の前記圧縮された第1混合冷媒をもたらす配管手段、を具備している請求項11に記載の加圧供給ガスの液化装置。

【請求項13】 加圧供給ガスの液化装置であって、

(1) 蒸留手段及び関連の配管手段であって、前記冷却された加圧供給ガスを蒸留塔に導入して、更にメタンを富化した塔頂流れとメタンよりも重い成分を含む塔底流れとに蒸留し、ここで、前記冷却された加圧供給ガスが天然ガスから得られるメタンに富む供給ガスである蒸留手段及び関連の配管手段、

(2) 分離手段及びそれに関連する配管手段であって、前記塔底流れを炭素原子数が4以下の成分を含む軽い炭化水素の流れと、炭素原子数が4よりも多い成分を含む重い炭化水素の流れとに分離する分離手段及びそれに関連する配管手段、

(3) 前記第1熱交換手段内の冷却手段であって、前記軽い炭化水素の流れを冷却する冷却手段、並びに

(4) 配管手段であって、記第2熱交換手段での間接熱交換によって更に冷却して凝縮させる前に、(3)で得られる冷却された前記軽い炭化水素の流れと(1)の前記塔頂流れとを組み合わせる配管手段、を更に具備している請求項11に記載の加圧供給ガスの液化装置。

【請求項14】 前記冷却された加圧供給ガスを前記蒸留塔に導入する箇所よりも下方の箇所で、前記蒸留塔に加圧供給ガスの一部を導入する配管手段を更に具備している請求項13に記載の加圧供給ガスの液化装置。

【請求項15】 前記第2熱交換手段での間接熱交換によって更に冷却して凝縮させる前に、前記冷却された加圧供給ガスからメタンよりも重い炭化水素を除去する手段を更に含み、ここで、この冷却された加圧供給ガスが

天然ガスから得られるガスに富む供給ガスである加圧供給ガスの液化装置であって、前記手段が、

(1) 前記冷却された加圧供給ガスを、更にメタンに富む塔頂流れとメタンよりも重い成分の塔底流れとに分離する蒸留塔、

(2) 前記塔底流れを、炭素原子数が3又はそれ以下の成分を含む軽い炭化水素流れと、炭素原子数が3よりも多い成分を含む重い炭化水素流れとに分離する手段、

(3) 前記第1熱交換手段内の冷却手段であって、前記軽い炭化水素流れを冷却する冷却手段、

(4) (1)の前記蒸留塔の還流として、(3)で得られる冷却された前記軽い炭化水素流れの一部を前記蒸留塔に導入する配管手段、を具備している請求項11に記載の加圧供給ガスの液化装置。

【請求項16】 加圧供給ガスの液化装置であって、前記第1圧縮手段が、

少なくとも2つの圧縮機段階とそれに関連する配管手段であって、このうちの1つの段階が中間の圧縮された冷媒をもたらす少なくとも2つの圧縮機段階とそれに関連する配管手段、

中間冷却器であって、前記中間の圧縮された冷媒を冷却して部分的に凝縮させ、それによって2相中間冷媒をもたらす中間冷却器、

分離装置及びそれに関連する配管手段であって、前記2相中間冷媒を、中間冷媒蒸気と中間冷媒液とに分離する分離装置及びそれに関連する配管手段、並びに追加の圧縮機段階であって、前記中間冷媒蒸気を圧縮して更に圧縮された冷媒をもたらす追加の圧縮機段階、を具備しており、この加圧ガスの液化装置が、

配管手段であって、(a)において冷却し、凝縮させ、そしてフラッシュさせて気化する前記第1混合冷媒を提供する前記圧縮された第1混合冷媒として、前記更に圧縮された冷媒を提供する配管手段、

前記中間冷媒液を前記第1熱交換手段に移動させる配管手段、

前記第1熱交換手段内の熱輸送手段であって、前記中間冷媒液を冷却する熱輸送手段、

減圧手段であって、得られる冷却された前記中間冷媒液をフラッシュさせて、本質的に一定の第1圧力で、追加の気化する混合冷媒を提供する減圧手段、並びに前記追加の気化する混合冷媒を前記第1熱交換手段に導入して、この第1熱交換手段での寒冷を提供する配管手段、を更に具備している請求項11に記載の加圧供給ガスの液化装置。

【請求項17】 加圧供給ガスの液化装置であって、

(1) 前記冷却された圧縮第2混合冷媒が部分的に凝縮したときに、この冷却された圧縮第2混合冷媒を分離して、中間第2混合冷媒蒸気と中間第2混合冷媒液とをもたらす分離装置、

(2) 前記第2熱交換手段内の熱輸送手段であって、前

記中間第2混合冷媒液を冷却する熱輸送手段、

(3) 得られる過冷却された前記中間第2混合冷媒液をフラッシュして、本質的に一定の前記第2圧力で追加の気化する混合冷媒を提供する減圧手段、並びに

(4) 前記追加の気化する混合冷媒を前記第2熱交換手段に導入して、この第2熱交換手段内において寒冷を提供する配管手段、を更に具備している請求項11に記載の加圧供給ガスの液化装置。

【発明の詳細な説明】

#### 【0001】

【発明の属する技術分野】遠隔地での天然ガスの液化、人口集中地域への液化天然ガス(LNG)の輸送、並びに局地的な消費のためのLNGの貯蔵及び気化は、世界中で長年にわたってうまく行われてきた。LNG製造箇所は通常、LNGを最終使用者に輸送する大型のLNGタンカーのための入港施設を持つ遠隔地方の地上に設置されている。

#### 【0002】

【従来の技術】LNG製造のための多くの処理サイクルが開発されており、これらは液化のために必要とされる大量の寒冷(refrigeration)を発生させる。典型的にそのようなサイクルは、1種のクロロフルオロカーボン冷媒又はプロパンを使用する1成分冷媒装置の組み合わせを利用しておらず、これは1若しくは複数の混合冷媒(MR)系と組み合わせて操作する。既知の混合冷媒は典型的に、軽い炭化水素と随意の窒素を含有しており、特定の処理工程の圧力レベル及び温度のために調節した組成を使用する。

【0003】現在のLNG処理サイクル及び装置の設計及び操作の目的は、製品の需要量及び周囲温度条件の変化に応じて操作を行いつつ、エネルギー消費量を最小化し且つLNG生産量を最大化することである。LNG製造設備は典型的に遠隔地の地上に設置するので、プラントのバッテリーリミットのために必要とされる面積はプラントの設計及び配置の重要な要素ではなかった。

【0004】多くの混合冷媒(MR)LNGサイクルが、当該技術分野で開示されている。これらのサイクルは一般的に、第1熱交換器(すなわち、比較的高温用の(warm or high level)熱交換器)において比較的高温で気化する第1冷媒(すなわち、比較的高温用のMR)、第2熱交換器(すなわち、比較的低温用の(cold or low level)熱交換器)において比較的低温で気化する第2冷媒(すなわち、比較的低温用のMR)とを使用する。米国特許第4274849号明細書は2つの混合冷媒を用いるプロセスを開示しており、ここでは供給ガスを初めに、比較的低温用のMRの熱交換器を出る冷媒流体を使用して別の熱交換器中で冷却する。その後、予備冷却された供給ガスを、比較的低温用のMR熱交換器において更に冷却して液化する。気化した比較的低温用の冷媒は圧縮した後

で、比較的高温用のMRの熱交換器において比較的高温用の冷媒との熱交換によって冷却する。この方法の欠点は、供給物の予備冷却のために更なる熱交換器を必要とすることである。

【0005】米国特許第4112700号明細書は、2つのMRを用いる方法を開示しており、ここでは、比較的高温用のMRを途中の圧縮によって3つの異なる圧力で沸騰させる。これは、複数の熱交換器又は複数の熱交換領域の使用を必要とし、また圧縮機への複数の戻り流れを必要とする。異なる組成の非平衡流れが比較的高温用の混合冷媒の圧縮系列の中間段階において混合されるので、そのような複数の熱交換／圧縮段階は熱力学的な視点から見ると不利である。流れの混合は熱力学的に不可逆的であり、従ってこれはサイクル効率を低下させる。

【0006】2つの混合冷媒を用いる方法は米国特許第4525185号明細書に記載されており、ここでは比較的高温用のMRを3つの異なる圧力レベルで沸騰させる。これは複数の熱交換器又は熱交換領域を使用することを必要とし、また比較的高温用のMRの圧縮機への中間段階供給源に結合した複数の容器、弁、及び配管をもたらし、そしてプラントが必要とする面積を大きくする。この方法においては、供給物を初めに、比較的低温用のMRの熱交換器を出る比較的低温用のMRを使用して冷却する。この手法の欠点は、上述の米国特許第4274849号明細書と同様に追加の熱交換器を必要とすることである。この処理サイクルにおいては、比較的高温用の混合冷媒の圧縮系列において、非平衡流れを中間段階で混合し、これは熱力学的に不可逆であり、サイクルの効率を低下させる。

【0007】米国特許第4545795号明細書は、2つのMRを用いる方法を開示しており、ここでは、比較的高温用のMRを3つの異なる圧力レベルで沸騰させる。これは、比較的高温用のMRの熱交換器において複数の熱交換器又は熱交換領域を使用することを必要とする。この方法においては、供給物を初めに、比較的低温用のMRの熱交換器を出る流体を使用して冷却する。またこの方法は、上述の4274849号明細書と同様に、追加の熱交換器を必要とする。このフローシートでは、非平衡流れを比較的高温用のMRの圧縮系列において中間混合し、これは上述のように熱力学的に不可逆性であるので、このフローシートも熱力学的な視点から見ると不利である。

【0008】米国特許第4539028号明細書には、2つの混合冷媒を用いる方法が記載されており、ここでは比較的高温用のMRを3つの異なる圧力レベルで沸騰させる。これは複数の熱交換器又は熱交換領域を使用することを必要とする。比較的低温用のMRは、2つの異なる圧力レベルで沸騰させる。これも複数の熱交換器又は熱交換領域を使用することを必要とする。この方法に

おいては、供給物を比較的低温用のMRを使用して初めに冷却する。これは追加の熱交換器を必要とし、上述のいくつかの方法と同様な欠点を持つ。混合冷媒圧縮系列において非平衡流れを中間混合するので、このサイクルも熱力学的に不利である。この混合は、熱力学的に不可逆であり、従ってサイクル効率を低下させる。

【0009】H. Paradowskiらの論文「liquefaction of Associated Gases」(1983年5月15～19日の第7回International Conference on LNG)は、2つのMRを用いる方法を開示しており、ここでは、比較的高温用の混合冷媒を3つの異なる圧力レベルで沸騰させる。これは、複数の熱交換器又は熱交換領域を使用することを必要とする。加えて、比較的低温用のMRの熱交換器を出る比較的低温用のMRを使用して供給物を初めに冷却し、従って追加の熱交換器を必要とする。比較的高温用のMR流れと中間MR流れを冷媒圧縮系列において混合する前は、比較的高温用のMRの流れは一般に中間流れと熱的に平衡ではないので、この方法も熱力学的に不利である。この圧縮機の主流への流れの混合は、熱的に不可逆であり、従ってサイクル効率を低下させる。

【0010】米国特許第4911741号明細書は2つのMRを用いる方法を開示しており、ここでは比較的高温用のMRを3つの異なる圧力レベルで沸騰させる。これは複数の熱交換器又は複数の熱交換領域の使用を必要とし、また潜在的に温度が異なる流れを高温混合冷媒圧縮系列において中間混合するので、上述のように熱力学的に不利である。この流れの混合は熱力学的に不可逆であり、従ってサイクル効率を低下させる。

【0011】米国特許第4339253号明細書は2つのMRを用いる方法を記載している。ここでは比較的高温用のMRを2つの異なる圧力レベルで沸騰させる。加えて、比較的高温用のMRからの中間液体流れを3つの圧力で沸騰させる。これは、複数の熱交換器又は熱交換領域の使用を必要とする。この方法では、初めに供給物を冷却し、その後で比較的重い炭化水素を、比較的低温用のMRの熱交換器の高温端から出る比較的低温用のMR蒸気との熱交換によって除去する。この手法の欠点は、追加の熱交換器を必要とすることである。またこの熱交換器は、圧縮前に比較的低温用のMRの流れの圧力降下を大きくする。上述のいくつかの方法と同様に、比較的高温用のMRの圧縮系列において非平衡流れを中間混合するので、この方法は熱力学的に不利である。この主流への流れの混合は熱力学的に不可逆であり、従ってサイクルの効率を低下させる。

【0012】米国特許第4094655号明細書は、2つのMRを使用する方法を記載している。ここでは、比較的低温用のMRを2つの異なる圧力レベルで沸騰させる。これは複数の熱交換器又は熱交換領域の使用を必要

とする。この方法では、~~一般的~~的高温用のMRを、比較的高温用の混合冷媒のループ自身によって冷却するのではなく、比較的低温用のMRの熱交換器からの流体を使用して初めに冷却する。この方法の欠点は、追加の熱交換器を必要とすることである。上述のいくつかの方法と同様に、比較的高温用のMRの圧縮系列において非平衡流れを中間混合するので、この方法は熱力学的に不利である。主流への流れの混合は熱力学的に不可逆であり、従ってサイクル効率を低下させる。

【0013】比較的高温用のMRを複数の異なる圧力レベルで沸騰させる他の2つのMRを用いる方法は、米国特許第4504296号、同第4525185号、同第4755200号、及び同第4809154号明細書に記載されている。

#### 【0014】

【発明が解決しようとする課題】上述のLNGプロセスは典型的に地上基地で使用し、プラントのバッテリーリミットのために必要とされる面積は一般に、プラントの設計及び配置の重要な要素ではない。最近では、商業的な興味は、上述のような地上基地での液化方法に依存しないガス埋蔵資源の潜在的な実収率に注がれてきている。そのような埋蔵資源は沖合で見出され、これらの埋蔵資源の実収率は、船、はしけ、及び沖合のプラットフォームでの設置にふさわしいガス液化装置の必要を増加させている。

【0015】最も大規模なLNG製造プラントは、プロパン冷媒サイクルを使用して供給ガスを予備冷却し、そしてその後、多成分又は混合冷媒(MR)サイクルによって更に冷却して液化させる。プロパン予備冷却サイクルは、地上のプラントでは非常に効率的で費用対効果が良いが、船のデッキ又ははしけでの用途のためにはある種の欠点がある。非常に大量のプロパンの保持には潜在的な危険性があり、多量のプロパンの蒸発器は乏しい設計上の面積を消費する。上述のような2つの混合冷媒を用いるサイクルのいくつかの例は、プロパン予備冷却装置におけるプロパンの貯蔵量を減少させるが、大きな熱交換器と容器を必要とし、これは設計上の面積を増加させる。従って、これらは沖合での用途にふさわしくない。

【0016】本発明は、設計上の面積が最小になる天然ガス液化方法を提供することを目的とする。ここで、この方法は沿岸での用途にふさわしく、サイクル中においてプロパンの予備冷却を伴わずに高い効率で操作することができ、また小さく費用対効果が良好である。これらの目的に合う天然ガス液化方法及び装置を、以下で説明し、特許請求の範囲で定義している。

#### 【0017】

【課題を解決するための手段】本発明は、加圧供給ガスの液化方法であって、(a) 第1熱交換領域において、気化する第1混合冷媒との間接熱交換によって加圧供給

ガスを冷却し、この第1混合冷媒は本質的に一定の第1圧力で気化して、冷却された供給ガスと第1混合冷媒蒸気とをもたらし、(b) 第2熱交換領域において、気化する第2混合冷媒との間接熱交換によって冷却された供給ガスを更に冷却して凝縮させ、ここで、この第2混合冷媒は本質的に一定の第2圧力で気化して、液体生産物と第2混合冷媒蒸気とをもたらし、(c) 第1混合冷媒蒸気を圧縮し、そして冷却し、凝縮させ、得られる圧縮された第1混合冷媒蒸気をフラッシュ(flash)させて気化する第1混合冷媒を提供し、そして(d) 第2混合冷媒蒸気を圧縮し、そして冷却し、凝縮させ、得られる圧縮された第2混合冷媒蒸気をフラッシュさせて気化する第2混合冷媒を提供し、ここで、第2混合冷媒蒸気の冷却及び凝縮のための寒冷の少なくとも一部を、第1熱交換領域において、気化する第1混合冷媒と間接熱交換させることによって提供する、ことを含む加圧供給ガスの液化方法である。

【0018】(c)における第1混合冷媒蒸気の圧縮は、少なくとも1つの中間2相冷媒流れを発生させる少なくとも2つの圧縮段階で必要とされるようを行うことができる。ここでは、中間2相冷媒流れは、中間冷媒蒸気と中間冷媒流体とに分け、この中間冷媒蒸気を圧縮して更に圧縮された冷媒をもたらし、また、この中間冷媒液をポンプ送出して更に加圧された冷媒液をもたらし、この更に圧縮された冷媒と更に加圧された液体冷媒とを組み合わせ、そして得られる組み合わされた第1混合冷媒を冷却し、凝縮させ、随意に過冷却し、そしてフラッシュさせて(a)において気化している第1混合冷媒を提供する。

【0019】圧縮の後で冷却して凝縮させる第1混合冷媒蒸気のための寒冷の少なくとも一部は、第1熱交換領域において気化する液体第1混合冷媒との間接熱交換によって提供することができる。典型的に、気化する第1混合冷媒は、絶対圧力で約1bar～30bar(約100kPa～3MPa)の圧力で気化させ、気化する第2混合冷媒は絶対圧力で約1bar～15bar(約100kPa～1.5MPa)の圧力で気化させる。

【0020】第1混合冷媒の蒸気は通常、窒素、メタン、エタン、エチレン、プロパン、プロピレン、i-ブタン、ブタン、i-ペンタン、塩素化炭化水素、及びフッ素化炭化水素からなる群より選択される2又はそれ以上の成分を含んでいる。第2混合冷媒の蒸気は通常、窒素、メタン、エタン、エチレン、プロパン、プロピレン、i-ブタン、ブタン、i-ペンタン、塩素化炭化水素、及びフッ素化炭化水素からなる群より選択される2又はそれ以上の成分を含んでいる。

【0021】好ましくは、加圧供給ガスは天然ガスの加圧流れを処理して、汚染物質を除去することによって供給する。ここでこの汚染物質は、水、二酸化炭素、硫黄含有化合物、水銀、及び水銀含有化合物からなる群より

選択される。必要なら、(1) 冷却された供給ガスを第1の箇所で蒸留塔に導入し、そしてこの蒸留塔からメタンに富む塔頂流れとメタンよりも重い成分の塔底流れとを引き出し、そして(2) 塔底流れを分離して、炭素原子数が4までの成分を含む第1炭化水素流れと、炭素原子数が4よりも多い成分を含む第2炭化水素流れとを得る、ことによって、メタンよりも重い炭化水素を、加圧供給ガスから除去することができる。

【0022】随意にこの方法は、(3) 第1熱交換領域における間接熱交換によって第1炭化水素流れの少なくとも一部を冷却し、そして(4) 得られる冷却された炭化水素流れをメタンに富む塔頂流れと組み合わせ、その後(b)において第2熱交換領域での間接熱交換によって更に冷却して凝縮させる、ことを更に含むことができる。

【0023】(b)の液体生産物はメタンに富む液体でよく、このメタンに富む液体生産物をフランシュさせて分離し、更にメタンに富む液体製品と、メタンよりも軽い成分を含むオフガス流れとに分離することができる。

【0024】圧縮の後で第2混合冷媒蒸気を冷却して凝縮させるための寒冷の一部は、第3の熱交換領域でのメタンよりも軽い成分を含むオフガス流れとの間接熱交換によって、少なくとも一部を提供することができる。加えて、圧縮の後で第2混合冷媒蒸気を冷却して凝縮させるための寒冷の一部は、少なくとも部分的に、第2熱交換領域で気化する第2混合冷媒との間接熱交換によって提供することができる。

【0025】圧縮の後の第2混合冷媒蒸気は、第1熱交換領域での間接熱交換によって冷却して、そこから第1温度で引き出すことができる。得られる冷却された第2混合冷媒流れは、第2熱交換領域に導入して、そこで間接熱交換によって更に冷却することができる。第2混合冷媒蒸気は、第2温度で第2熱交換領域から引き出し、また得られる更に冷却された第2混合冷媒の蒸気は好ましくは予備加熱することなく直接圧縮する。ここで好ましくは、第2温度は第1温度よりも低い温度である。

【0026】本発明の方法は、(b)において第2熱交換領域での間接熱交換によって更に冷却及び凝縮を行う前に、(1) 加圧供給ガスを冷却し、得られる冷却された供給ガスを蒸留塔に導入し、そしてこの蒸留塔からメタンに富む塔頂流れとメタンよりも重い成分を含む塔底流れとを引き出し、(2) 塔底流れを分離して、炭素原子数が4までの成分を含む第1炭化水素流れと、炭素原子数が4よりも多い成分を含む第2炭化水素流れとを得て、(3) 第1熱交換領域における間接熱交換によって第1炭化水素流れを冷却し、そして(4) (3)で得られる冷却された炭化水素流れの少なくとも一部を、

(1) の蒸留塔のための還流として使用する、ことによって、メタンよりも重い炭化水素を加圧供給ガスから除去することを更に含むことができる。

【0027】随意に加圧供給ガスの一部を、第1の箇所の下方の第2の箇所で蒸留塔に導入することができる。

【0028】必要ならば、上述の(c)における第1混合冷媒蒸気の圧縮を、中間圧力を冷媒を発生させる少なくとも2つの圧縮段階で行うことができる。ここでは、中間の圧縮された冷媒を冷却し、部分的に凝縮させ、そして中間の冷媒蒸気と中間の液体冷媒とに分離し、この中間の冷媒蒸気を圧縮して、更に圧縮された冷媒をもたらし、この更に圧縮された冷媒を冷却し、凝縮させ、随意に過冷却し、そしてフランシュさせて、上述の(a)の気化する第1混合冷媒を提供し、またこの中間の液体冷媒を過冷却して本質的に一定の圧力でフランシュさせて、第1熱交換領域において追加の寒冷をもたらす。

【0029】圧縮の後の第2混合冷媒蒸気の冷却及び凝縮は、第1熱交換領域における間接熱交換によって行って、中間の第2混合冷媒蒸気と中間の第2混合冷媒液を含んでいる部分的に凝縮した第2混合冷媒流れをもたらす。

【0030】付隨的で随意の工程の多くでは、(1) 部分的に凝縮した第2混合冷媒流れを分離して、中間の第2混合冷媒蒸気と中間の第2混合冷媒液とをもたらし、(2) 中間の第2混合冷媒蒸気を冷却し、凝縮させ、随意に過冷却し、そしてフランシュさせて、気化する第2混合冷媒を提供し、そして(3) 中間の第2混合冷媒液を過冷却して本質的に一定の第2圧力でフランシュさせ、第2熱交換領域において追加の寒冷を発生させる。

【0031】本発明は、加圧供給ガスの液化装置であつて、(a) 加圧供給ガスを冷却し、圧縮された第1混合冷媒を冷却し、且つ圧縮された第2混合冷媒を冷却する第1熱交換手段であつて、本質的に一定の第1圧力で気化する第1混合冷媒との間接熱交換によって、この冷却の少なくとも一部を行い、この冷却が冷却された加圧供給ガス、液化した第1混合冷媒、及び冷却された圧縮第2混合冷媒をもたらし、また、気化する第1混合冷媒が第1混合冷媒蒸気をもたらす第1熱交換手段、(b) 第1混合冷媒蒸気を圧縮して、圧縮された第1混合冷媒を提供する第1圧縮手段、(c) 液化した第1混合冷媒をフランシュさせて、気化する第1混合冷媒を提供する減圧手段、(d) 冷却された供給ガスを更に冷却して凝縮させ、且つ冷却された圧縮第2混合冷媒を更に冷却して液化する第2熱交換手段であつて、本質的に一定の第2圧力で気化する第2混合冷媒との間接熱交換によって、この冷却を少なくとも部分的に行い、この冷却が液体生産物と液化した第2混合冷媒とをもたらし、また、気化する第2混合冷媒が第2混合冷媒蒸気をもたらし、

(e) 第2混合冷媒蒸気を圧縮して、圧縮された第2混合冷媒を提供する第2圧縮手段、(f) 液化した第2混合冷媒をフランシュさせて、気化する第2混合冷媒を提供する減圧手段、及び(g) 配管手段であつて、第1熱

交換手段に加圧供給ガスを導入し、第1熱交換手段から第2熱交換手段に冷却された供給ガスを移動させ、第2熱交換手段から液体生産物を引き出し、第1混合冷媒蒸気を第1熱交換手段から第1圧縮手段に移動させ、また、得られる圧縮された第1混合冷媒蒸気を第1圧縮手段から第1熱交換手段に移動させ、冷却された圧縮第2混合冷媒を第1熱交換手段から第2熱交換手段に移動させ、第2混合冷媒蒸気を第2熱交換手段から第2圧縮手段に移動させ、また、得られる圧縮された第2混合冷媒蒸気を第2圧縮手段から第1熱交換手段に移動させる、配管手段、を具備している加圧供給ガスの液化装置。

【0032】第1圧縮手段は必要ならば、少なくとも2つの圧縮機段階 (stage) 及びそれに関連する配管手段であって、そのうちの1つの段階が中間の圧縮された冷媒をもたらす少なくとも2つの圧縮機段階及びそれに関連する配管手段、中間冷却器であって、中間の圧縮された冷媒を冷却して部分的に凝縮させ、それによって2相の中間冷媒をもたらす中間冷却器、分離装置及びそれに関連する配管手段であって、2相の中間冷媒を、中間冷媒蒸気と中間冷媒液とに分離する分離装置及びそれに関連する配管手段、追加の圧縮機段階であって、中間冷媒蒸気を圧縮して更に圧縮された冷媒をもたらす追加の圧縮機段階、中間冷媒液を加圧するポンプ送出手段とそれに関連する配管手段、及び得られる加圧された中間冷媒液と更に圧縮された冷媒とを組み合わせて、(a)の圧縮された第1混合冷媒をもたらす配管手段、を具備することができる。

【0033】この装置は、(1)蒸留手段及び関連の配管手段であって、冷却された加圧供給ガスを蒸留塔に導入し、更にメタンに富む塔頂流れとメタンよりも重い成分を含む塔底流れとに分け、ここで、この冷却された加圧供給ガスが天然ガスから得られるメタンに富む供給ガスである蒸留手段及び関連の配管手段、(2)分離手段及びそれに関連する配管手段であって、塔底流れを炭素原子数が4までの成分を含む軽い炭化水素の流れと、炭素原子数が4よりも多い成分を含む重い炭化水素の流れとに分離する分離手段及びそれに関連する配管手段、

(3)第1熱交換手段内の冷却手段であって、軽い炭化水素の流れを冷却する冷却手段、並びに(4)配管手段であって、第2熱交換手段での間接熱交換によって更に冷却して凝縮させる前に、(3)で得られる冷却された軽い炭化水素の流れと(1)の塔頂流れとを組み合わせる配管手段、を更に具備することができる。

【0034】随意に、この装置は、冷却された加圧供給ガスを蒸留塔に導入する箇所よりも下方の箇所で、この蒸留塔に加圧供給ガスの一部を導入する配管手段を更に具備することができる。

【0035】この装置はまた、冷却された加圧供給ガスを第2熱交換領域での間接熱交換によって更に冷却して凝縮させる前に、この冷却された加圧供給ガスからメタ

ンよりも重い炭化水素を除去し、ここで、この冷却された加圧供給ガスが天然ガスから得られるメタンに富む供給ガスである手段であって、(1)冷却された加圧供給ガスを、更にメタンに富む塔頂流れと、メタンよりも重い成分の塔底流れとに分離する蒸留塔、(2)塔底流れを、炭素原子数が3又はそれ以下の成分を含む軽い炭化水素流れと、炭素原子数が3よりも多い成分を含む重い炭化水素流れとに分離する手段、(3)第1熱交換手段内の冷却手段であって、軽い炭化水素流れを冷却する冷却手段、(4)(1)の蒸留塔の還流として、(3)で得られる冷却された炭化水素流れの一部をこの蒸留塔に導入する配管手段、を有する手段を具備することができる。

【0036】第1圧縮手段は、必要ならば、少なくとも2つの圧縮機段階とそれに関連する配管手段であって、このうちの1つの段階が中間の圧縮された冷媒をもたらす少なくとも2つの圧縮機段階とそれに関連する配管手段、中間冷却器であって、中間の圧縮された冷媒を冷却して部分的に凝縮させ、それによって2相の中間冷媒をもたらす中間冷却器、分離装置及びそれに関連する配管手段、追加の圧縮機段階であって、中間冷媒蒸気を圧縮して更に圧縮された冷媒をもたらす追加の圧縮機段階、中間冷媒液を加圧するポンプ送出手段とそれに関連する配管手段、及び得られる加圧された中間冷媒液と更に圧縮された冷媒とを組み合わせて、(a)の圧縮された第1混合冷媒をもたらす配管手段、を具備することができる。

【0037】この装置は、配管手段であって、冷却し、凝縮させ、そしてフラッシュさせて上述の(a)の気化する第1混合冷媒を提供する加圧第1混合冷媒として、更に圧縮された冷媒を提供する配管手段、第1熱交換手段に中間冷媒液を移動させる配管手段、第1熱交換手段内の熱輸送手段であって、中間冷媒液を冷却する熱輸送手段、減圧手段であって、得られる冷却された中間冷媒液をフラッシュさせて、本質的に一定の第1圧力で、追加の気化する混合冷媒を提供する減圧手段、並びに追加の気化する混合冷媒を第1熱交換手段に導入して、この第1熱交換手段での寒冷を提供する配管手段、を更に具備してもよい。

【0038】また、本発明の装置は、(1)冷却された圧縮第2混合冷媒が部分的に凝縮したときに、この冷却された圧縮第2混合冷媒を分離して、中間第2混合冷媒蒸気と中間第2混合冷媒液とをもたらす分離装置、

(2)第2熱交換手段内の熱輸送手段であって、中間第2混合冷媒液を冷却する熱輸送手段、(3)得られる過冷却された中間第2混合冷媒液をフラッシュさせて、本質的に一定の第2圧力で、追加の気化する混合冷媒を提供する減圧手段、並びに(4)追加の気化する混合冷媒を第2熱交換手段に導入して、この第2熱交換手段内において寒冷を提供する配管手段、も具備してもよい。

【0039】

【発明の実施の形態】本発明は、ガス液化のための効果

的な方法及び装置である。これは特に、船、はしけ、又は沖合のプラットフォームといった空間が貴重な場所での天然ガスの液化に有益である。本発明は、必要とされる装置の数を少なくし且つ大きさを小さくする。

【0040】本発明では、2つの混合成分冷媒を使用して装置に寒冷を提供し、プロパン又は他の一種の炭化水素の予備冷却装置を必要としない。比較的高温の寒冷は、蒸留によって供給物から比較的重い炭化水素を除去するに最適な温度範囲で提供し、この寒冷は、1つの気化圧力で提供して、天然ガス供給物の予備冷却と比較的低温用の混合冷媒の冷却とを同時に行う。

【0041】比較的低温用の混合冷媒は、1つの気化圧力で寒冷を提供して、供給物の最終的な冷却と液化を達成する。比較的低温用の混合冷媒蒸気は、比較的高温用の混合冷媒によって提供される最低温度に近い温度で冷間圧縮する。それぞれの混合冷媒の蒸気は、窒素、メタン、エタン、エチレン、プロパン、プロピレン、i-ブタン、ブタン、i-ペンタン、及び他の炭化水素からなる群より選択される1又は複数の成分を含んでいる。他の化合物、例えば塩素化及び/又はフッ素化炭化水素を混合冷媒に含ませることができる。

【0042】混合成分循環を使用する比較的高温の寒冷の提供方法は、比較的高温用の混合成分流れを圧縮し、そして外部冷却流体、例えば空気又は冷却水を使用してこの圧縮された流れを冷却することからなる。混合冷媒の一部は、複数の圧縮段階の間の外部冷却によって液化してもよい。本発明の効果的な態様では、この液体をポンプ送出し、圧縮の最終段階を出るガスと混合し、そして外部冷却を使用して冷却する。圧縮された比較的高温用の混合冷媒流れの一部は、外部冷却の後で液化する。

【0043】圧縮され冷却された混合冷媒流れの少なくとも一部を、熱交換器において更に冷却し、そして減圧して熱交換によって気化させ、その一方で供給ガスと比較的低温用の混合冷媒を冷却する。蒸発して暖められた混合冷媒流れは、圧縮して再循環させる。本発明によれば、比較的高温用の混合冷媒循環は、天然ガス液化に必要とされる全寒冷の一部として、-20°C~-70°Cの温度の寒冷を提供する。

【0044】混合成分循環を使用する比較的低温の寒冷の提供方法は、混合成分流れを圧縮し、そして外部冷却流体、例えば空気又は冷却水を使用してこの圧縮された流れを冷却することからなる。圧縮されて冷却された混合冷媒流れの少なくとも一部は、比較的高温用の混合冷媒を使用する熱交換器において更に冷却し、そしてこの更なる冷却の後で、減圧して(フラッシュさせて)、冷却され液化される供給ガス流れとの熱交換によって気化させる。気化して暖められたこの混合冷媒スチームは、更なる熱交換を行わないで圧縮して再循環させる。

【0045】本発明の主な態様は図1で説明する。典型的にメタンを含有するガスであり好ましくは天然ガスで

あり、圧力が絶対圧約300bar(約30MPa)(ここで報告する圧力は全て絶対圧である)までである供給ガス90を、前処理区画100において既知の方法で乾燥及び清浄化して、酸性ガス、例えばCO<sub>2</sub>及びH<sub>2</sub>S、並びに汚染物質、例えば水銀又は水銀含有化合物を除去する。

【0046】前処理したガス102は第1の熱交換器又は熱交換領域104に入れて、そこで冷却して、約-20°C~-70°Cの中間温度にする。この冷却工程の実際の温度は、供給物組成及び所望のLNG製品の仕様(例えば、熱量)に依存しており、また場合によっては、圧縮施設間のある種の動力分割を達成する希望に支配される。熱交換器104での冷却は、比較的高温用の混合冷媒流れ110を暖めて気化させることによって行う。この比較的高温用の混合冷媒流れ110は、典型的にメタン、エタン、プロパン、i-ブタン、ブタン、及び場合によってはi-ペンタンからなる群より選択される1又は複数の炭化水素を含んでおり、また窒素のような他の成分を含むことができる。

【0047】冷却された供給流れ108は、再沸騰を伴うストリッパー塔又はスクラバー塔106に導入して、メタンよりも重い炭化水素を除去する。塔底生産物流れ112は分留区画114に入れて、そこでペンタンとそれよりも重い成分を分離して、流れ116で回収する。スクラバー塔106からの塔底流れの一部はヒーター172で加熱して、炊き上げ又はストリッピングガスをこの塔に提供する。ブタン及びそれよりも軽い成分は流れ118として回収して、熱交換器104で冷却し、スクラバー塔106の塔頂生産物と組み合わせて予備冷却された供給物流れ120をもたらす。あるいは、LNG製品の仕様に依存して、流れ118に分留を行って、この流れ118がプロパンとそれよりも軽い成分を含むようにすることができる。

【0048】予備冷却された供給物流れ120は、比較的低温用の混合冷媒流れ124を暖めて気化させることによる間接熱交換によって、熱交換器122において更に冷却して液化させる。典型的に液化天然ガス(LNG)である得られる液化生産物流れ121は、絞り弁126を通して低い圧力に断熱的に減圧することによってフラッシュさせる。あるいは、液化した生産物流れ121は、膨張ターピンを通して仕事膨張させることによって減圧させることができる。

【0049】減圧したLNG生産物流れを貯蔵タンク128に導入して、そこから最終的な液化した生産物流れ130を引き出す。場合によっては、天然ガス供給組成及び熱交換器122からの流れ121の温度に依存して、有意の量の軽いガス132が弁126を通すフラッシュの後で放出される。フラッシュガス流れ132は典型的に、例えば熱交換器162で、暖めてオフガス圧縮機134で圧縮して燃料ガスとして使用する。

【0050】天然ガスを周囲温度から約-20℃～-70℃の温度に冷却する寒冷は、上述のような比較的高温用の多成分冷媒循環によって提供する。流れ136は圧縮して冷却した後の比較的高温用の混合冷媒であり、典型的にいくらかの凝縮した液体を含む。この流れは、周囲温度、典型的に絶対圧で約3bar（約300kPa）よりも高い圧力で熱交換器104に入り、凝縮し、冷却され、随意に過冷却されて、約-20℃～-70℃の温度になって、流れ138として出る。流れ138は、絞り弁150を通して絶対圧で約1bar～約30bar（約100kPa～約3MPa）の低い圧力に断然的にフラッシュさせ、減圧された流れ110を熱交換器104の低温端に導入する。あるいは、冷却された冷媒流れ138を、膨張ターピンによる仕事膨張によって減圧することができる。等エンタルピー的又は本質的に等エントロピー的な減圧として定義されるフラッシュ工程は、冷却及び気化を含むことができ、また、減圧弁を通す絞りによって又は膨張ターピン若しくは膨張エンジンでの仕事膨張によって達成することができる。

【0051】フラッシュさせた比較的高温用の冷媒の流れ110は、熱交換器104において暖めて気化させ、好ましくはこの熱交換器104に戻る圧縮された冷媒流れ136の温度よりも低い温度で、蒸気冷媒流れ140としてこの熱交換器を去るようにする。蒸気冷媒流れ140を中間冷却機を備えた多段圧縮機142において圧縮して、絶対圧で約3bar（約300kPa）よりも高圧にする。段階的な圧縮機142の中間冷却器において液体144が形成されることがあり、この場合、この液体144をポンプ送出して、圧縮機142の最終段階からの圧縮された冷媒蒸気146と組み合わせることが好ましい。組み合わせられた冷媒流れ148を環境温度に近い温度まで冷却して、上述のような比較的高温用の混合冷媒流れ136を提供する。必要に応じて、2段階以上の圧縮を使用することができる。

【0052】組み合わせる工程では、複数の圧縮段階の間でガスを凝縮させて液体をもたらし、この凝縮した液体をポンプ送出してその後の圧縮段階から放出される蒸気の圧力に加圧し、この蒸気流れと液体流れを組み合わせ、そして組み合わせた流れを冷却する。この組み合わせる工程は、ガス液化サイクル全体の効率を改良する。この改良は、その後の圧縮段階で圧縮されるガスの質量流量を減少させ、且つ熱交換器104での冷却負荷を減少させることによって達成される。

【0053】ガス供給物流れ120を約-20℃～-70℃の温度から最終的な液化温度にする最終的な冷却は、上述のような冷媒成分を含む比較的低温用の混合冷媒循環を使用して達成する。ほぼ周囲温度で絶対圧が約3bar（約300kPa）よりも高圧の圧縮された比較的低温用の混合冷媒流れ152を、熱交換器104に入れて、この熱交換器104内の間接熱交換によって

約-20℃～-70℃の温度に冷却し、冷却された比較的低温用の混合冷媒流れ154として出す。

【0054】冷媒流れ154を熱交換器122において更に冷却し随意に過冷却して、約-125℃未満の最終的な温度にし、そして冷却された流れ158を絞り弁156を通して等エンタルピー的にフラッシュさせて、絶対圧で約3.3bar（約330kPa）の圧力にする。あるいは、冷却された流れ158は、膨張ターピン又は往復式膨張エンジンによって仕事膨張させて減圧することができる。冷媒流れ154の少量の部分は、流れ160として、熱交換器162においてフラッシュガス流れ132によって冷却することができる。

【0055】フラッシュさせた比較的低温用の冷媒流れ124は、熱交換器122の低温端に導入して、そこで気化させてこの熱交換器124に寒冷を提供する。気化させた比較的低温用の混合冷媒流れ164は、冷却されて熱交換器122に戻ってくる冷媒流れ154の温度よりも低い温度で熱交換器122を去る。気化した冷媒流れ164はその後、中間冷却器を備えた多段階圧縮機166で直接に圧縮して、絶対圧で約5bar（約500kPa）よりも高圧にして、比較的低温用の混合冷媒の流れ152を提供する。気化した比較的低温用の冷媒流れ164は、供給ガス又は他のプロセスガスを予備冷却するためには使用せず、従って予備加熱することなく直接に圧縮する。

【0056】熱交換器104及び122は、任意の適当な熱交換装置、例えば当該技術分野で既知の巻きコイル、シェル及び管、又はプレートーフィン熱交換器を使用することができる。巻きコイルの熱交換器は、大きさが小さく且つ熱移動効率が良好なので好ましい。

【0057】本発明の1つの他の態様を図2に示す。この態様では、ブタン及びそれよりも軽い成分を含む流れ118を熱交換器104に再循環させて、この熱交換器104において冷却し、そして2つの部分268及び270に分ける。部分268はスクラバー塔106のための還流として使用して、ベンゼンのような重い成分を除去してそれらの成分を非常に少量にする。残りの部分270は、スクラバー塔106の塔頂生産物と組み合わせて、予備冷却された供給物流れ120をもたらす。流れ268及び270の相対的な流量は、供給物の組成及び供給物流れから汚染物質を除去することが必要な程度に依存している。あるいは、流れ118が主にプロパンとそれよりも軽い成分を有するように装置を操作することができる。

【0058】本発明の第2の他の態様を図3に示す。この態様では暖かい天然ガス供給物102の少量の部分374を、熱交換器104で冷却するのではなく、供給流れ108をスクラバー塔106に導入する箇所よりも下方でスクラバー塔106に直接に供給する。この態様は、ストリッピング蒸気を発生させるためにスクラバー

塔106のリボイラー102で必要とされる外部熱の量を減少させる。この態様は、熱交換器104の冷却負荷も減少させ、供給物102が比較的重い炭化水素を多く含有しているとき及び流れ108の液体画分の割合が多いときに有益である。

【0059】本発明の第3の態様を図4に示す。この態様では、圧縮機142の中間段階で凝縮する比較的高温用の液体冷媒144を、図1のようにポンプ送出して圧縮機からの流出物と組み合わせるのではなく、熱交換器404に直接供給する。圧縮された蒸気冷媒146は、冷却して、流れ436として熱交換器404に供給する。この熱交換器404において、この流れ436を冷却し且つ随意に過冷却して、約-30℃～-70℃の温度にし、絞り弁450を通してフラッシュさせ、そして流れ410として熱交換器404に供給する。中間冷媒液流れ144は熱交換器404に供給して、この熱交換器404において冷却し且つ随意に過冷却して流れ438よりも比較的暖かい温度にし、絞り弁468を通してフラッシュさせ、そして熱交換器404の中間の箇所において熱交換器404に導入する。それぞれの絞り弁450及び468での圧力降下は、フラッシュされるこれらの液体が本質的に同じ圧力で気化するように選択する。

【0060】「本質的に同じ圧力」という用語はここで使用する場合、流れる液体又は蒸気によってもたらされるわずかな流体力学的又は気圧力学的な圧力降下又は差の分のみ、熱交換器内において気化する冷媒の圧力が変化することを意味している。先に記載した多くの従来技術の方法と違って、冷媒を、異なる圧力で別々の熱交換管又は領域において気化させることはない。

【0061】図4の態様は、比較的多くの資本コストがかかるが、図1の態様に比べて効率が約3%～4%高いようにして運転することができる。また、熱交換器404は所定表面積では比較的高さがあり、甲板又ははしけに取り付ける適用では潜在的な利点が減少する。

【0062】本発明の第4の態様は図5に示されており、ここでは、冷却された比較的低温用の混合冷媒流れ154が2相流れであり、これをドラム576において蒸気流れ568と液体流れ570とに分離する。これらの冷媒流れは別々に熱交換器522に導入する。蒸気冷媒流れ568は、液化して随意に過冷却して低温にし、そして絞り弁556を通して等エンタルピー的にフラッシュさせ、冷媒流れ524をもたらす。この冷媒流れ524は、熱交換器522の低温端に導入して気化させ、生産物液化のための寒冷の一部を提供する。液体冷媒流れ570は熱交換器522において過冷却して、流れ558よりは暖かい温度にし、そして絞り弁572を通して断熱的にフラッシュさせて、低圧冷媒流れ574をもたらす。この冷媒流れ574は、熱交換器522に中間の位置で導入して気化させ、生産物液化のための寒冷

残りの部分を提供する。この熱交換器におけるこれら2つの冷媒流れの気化圧力は、典型的に絶対圧で約1bar～30bar(約100kPa～3MPa)である。

【0063】図5の態様の効率は、図1の態様の効率と比べると約4%改良されているが、資本コストが比較的多くかかる。また、熱交換器522は所定の設置面積では比較的高さが高く、甲板又ははしけに搭載する用途では利点が潜在的に減少している。

#### 【0064】例

図1の天然ガス液化方法を、熱及び物質バランスの計算でシミュレーションして、本発明を説明する。天然ガス流れ90は初めて前処理区画100において清浄化して乾燥し、酸性ガス、例えばCO<sub>2</sub>及びH<sub>2</sub>S、並びに汚染物質、例えば水銀を除去する。前処理した供給ガス102は、流量が17470kg-mol/時、圧力が絶対圧で52bar(5.2MPa)、そして温度が38℃ある。この供給流れ102のモル組成を以下の表1に与える。

#### 【0065】

#### 【表1】

この例での供給ガス組成

組成	モル分率
窒素	0.005
メタン	0.8738
エタン	0.067
プロパン	0.035
i-ブタン	0.006
ブタン	0.009
i-ペンタン	0.003
ペンタン	0.002
ヘキサン	0.001

【0066】前処理した供給ガス102は熱交換器104で予備冷却して-36℃にし、この予備冷却した供給物流れ108をスクラバート106に入れる。熱交換器104での冷却は、比較的高温用の混合冷媒流れ110を暖めて気化させることによって行う。この比較的高温用の混合冷媒流れ110の流量は25433kg-mol/時であり、組成はメタン0.01、エタン0.47、プロパン0.06、i-ブタン0.16、及びブタン0.30である(モル分率)。

【0067】供給物中のペンタン及びそれよりも重い成分は、スクラバート106で取り除く。スクラバート106の塔底生産物112は分別区画114に入れ、そこでプロパンよりも重い成分を流れ116として回収する。プロパン及びそれよりも軽い成分は流れ118として回収して、これを熱交換器104において-36℃まで冷却し、スクラバートの塔頂生産物と再び組み合わせ

て、予備冷却された供給物流れ120を作る。この流れ120の流量は17315kg-mol/時である。

【0068】予備冷却された流れ120は、暖められて気化する比較的低温用の混合冷媒流れ124との間接熱交換によって、-162°Cまで熱交換器122において更に冷却して液化する。この熱交換器122に入る流れ124は、モル流量が28553kg-mol/時、温度が-164°C、そして圧力が絶対圧で3.35bar(335kPa)である。この冷媒流れの組成は、窒素0.14、メタン0.35、エタン0.41、及びプロパン0.10である(モル分率)。

【0069】得られる液化天然ガス(LNG)流れ121をその後、絞り弁126を経由させて断熱的にフラッシュさせて、その沸騰圧力である絶対圧で1.05bar(105kPa)の圧力にする。フラッシュさせたLNG流れをタンク128に入れ、そこから最終的なLNG生産物流れ130を引き出す。この例においては、弁126によるフラッシュの後で軽いガス132は放出されず、従って熱交換器162及び圧縮機134は必要ではない。

【0070】天然ガス供給物102を周囲温度から-36°Cの温度に冷却するための寒冷は、上述のような比較的高温用の多成分冷媒循環によって提供する。比較的高温用の混合冷媒流れ136は、温度が38°C、圧力が絶対圧で24bar(2.4MPa)で熱交換器104に入れる。これは熱交換器104において-36°Cまで冷却し、その後、絞り弁150を通してフラッシュさせて、-38°Cの温度で減圧された冷媒流れ110をもたらす。流れ110は熱交換器104において暖めて気化させ、そして冷媒蒸気流れ140として、温度を34°C、圧力を絶対圧で3.8bar(380kPa)にして、この熱交換器104から出す。この低圧の冷媒蒸気は中間冷却器を伴う2段階の圧縮機142で圧縮して、絶対圧で24bar(2.4MPa)の最終圧力にする。この圧縮機の中間冷却器で作られた液体144は、ポンプ送出して、最終的な圧縮段階からの圧縮された冷媒146と再び組み合わせる。組み合わされた冷媒流れ148の液体流量は、12870kg-mol/時である。

【0071】熱交換器122における-36°Cから約-162°Cへの天然ガス供給物の最終的な冷却は、上述のような比較的低温用の多成分冷媒循環によって行う。圧縮された比較的低温用の混合冷媒流れ152は、絶対圧で55bar(5.5MPa)の圧力、38°Cの温度で熱交換器104に入れ、ここで-36°Cまで冷却して流れ154とする。この予備冷却した比較的低温用の冷媒を、熱交換器122で更に冷却して温度を-162°Cにし、流れ158をもたらす。この流れ158は絞り弁156を通してフラッシュさせる。減圧した冷媒流れ124は、その後、熱交換器122において暖めて気化さ

せ、最終的に-3°C、3.25bar(325kPa)(絶対圧)で流れ164として熱交換器122から出す。この低圧蒸気冷媒流れを、その後、中間冷却器を伴う3段階の圧縮機166で冷却して55bar(5.5MPa)(絶対圧)の最終圧力にする。

#### 【0072】

【発明の効果】従って、本発明は最少数の熱交換器を使用して供給ガス液化を行い、また、混合冷媒を使用する。ここでそれぞれの冷媒は、それぞれの熱交換器において本質的に一定の圧力で気化させる。これらの特徴は、従来の液化方法と比較すると、プロセスを単純化し且つプラントに必要とされる面積を小さくする。上述の従来技術の方法のそれとは、比較的高温及び比較的低温の冷却設備の熱交換器の少なくとも一方において、少なくとも2つの冷媒気化圧力レベルを利用する。本発明の方法及び装置は、プロセスが単純であり且つ必要とされる設置面積が小さいので、船、はしけ、又は沖合のプラットフォームの施設に特にふさわしい。

【0073】本発明の特徴は、供給物の予備冷却、比較的低温用の冷媒の予備冷却、及び比較的高温用の冷媒の冷却を、1つの本質的に一定の圧力で気化する比較的高温用の冷媒との熱交換によって1つの熱交換器で行うことである。加えて、供給物の予備冷却を、比較的低温用の冷媒の予備冷却及び比較的高温用の液体冷媒の冷却と組み合わせるので、本発明の方法は供給物予備冷却のための別の熱交換器を必要としない。比較的低温用の混合冷媒は、供給ガスの予備冷却に使用せず、従って予備加熱せずに直接に圧縮する。これによって第1段階の圧縮比率を非常に高くすることが可能であるので、所定の全圧縮比のために圧縮機に必要な中間冷却器が少なくてすむ。

【0074】本発明の本質的な特徴は、上述の開示で全て説明してきた。当業者は本発明を理解することができ、本発明の本質から外れずに、また特許請求の範囲に記載の本発明の範囲及びそれと等価な範囲から外れずに様々な変更を行うことができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の主な態様の概略のフローシートである。

【図2】本発明の第1の他の態様の概略のフローシートである。

【図3】本発明の第2の他の態様の概略のフローシートである。

【図4】本発明の第3の他の態様の概略のフローシートである。

【図5】本発明の第4の他の態様の概略のフローシートである。

#### 【符号の説明】

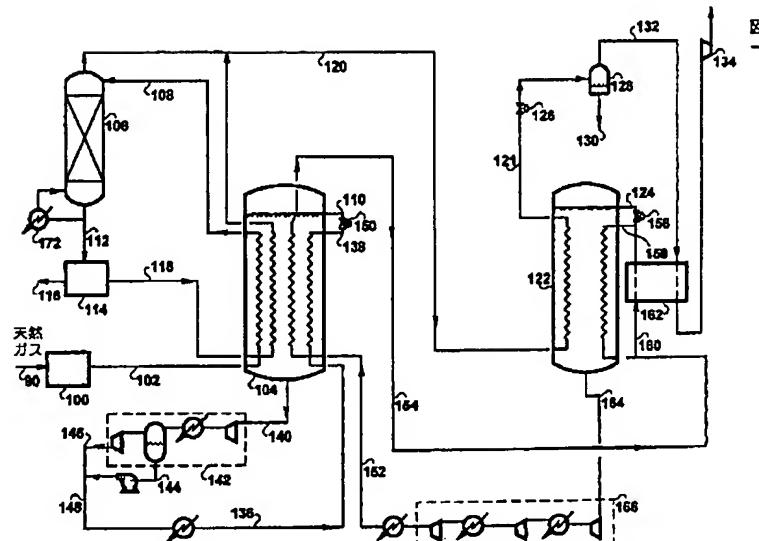
100…前処理装置

104、122、162、404、522…熱交換器

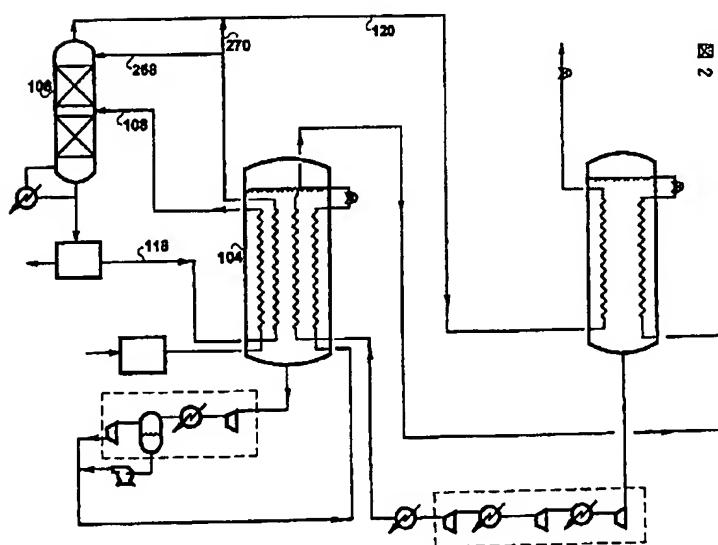
106…ストリッパー  
114…分別装置  
128…タンク

130…LNG生物流れ  
132…オフガス流れ  
142、166…多段圧縮機

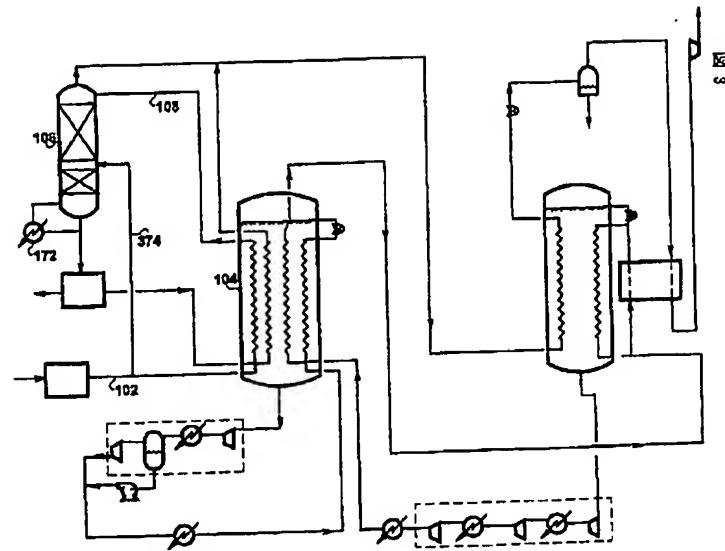
[図 1]



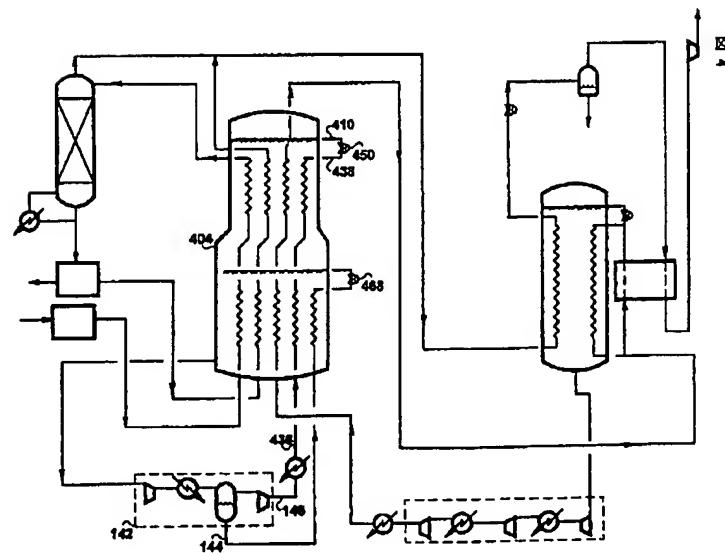
[図2]



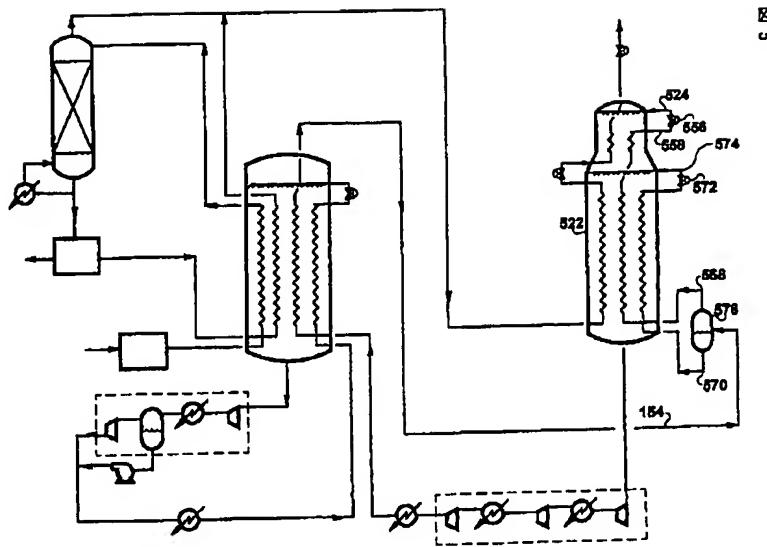
【图3】



【図4】



【図5】



## 【手続補正書】

【提出日】平成12年2月7日(2000.2.7)

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項10

【補正方法】変更

## 【補正内容】

【請求項10】圧縮の後の前記第2混合冷媒蒸気の冷却及び凝縮を、前記第1熱交換領域における間接熱交換によって行って、中間の第2混合冷媒蒸気と中間の第2混合冷媒液とを含む部分的に凝縮した第2混合冷媒流れをもたらし、更に、

(1) 前記部分的に凝縮した第2混合冷媒流れを分離して、中間の第2混合冷媒蒸気と中間の第2混合冷媒液とをもたらし、

(2) 前記中間の第2混合冷媒蒸気を冷却し、凝縮させ、随意に過冷却し、そしてフラッシュさせて、(b)の前記気化する第2混合冷媒を提供し、そして

(3) 前記中間の第2混合冷媒液を過冷却して本質的に一定の前記第2圧力でフラッシュさせて、前記第2熱交換領域において追加の寒冷を発生させる、請求項1に記載の加圧供給ガスの液化方法。

## 【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項15

【補正方法】変更

## 【補正内容】

【請求項15】(d)の前記第2熱交換領域での間接

熱交換によって更に冷却して凝縮させる前に、前記冷却された加圧供給ガスからメタンよりも重い炭化水素を除去する手段を更に含み、ここで、この冷却された加圧供給ガスが天然ガスから得られるメタンに富む供給ガスである加圧供給ガスの液化装置であって、前記手段が、

(1) 前記冷却された加圧供給ガスを、更にメタンに富む塔頂流れとメタンよりも重い成分の塔底流れとに分離する蒸留塔、

(2) 前記塔底流れを、炭素原子数が3又はそれ以下の成分を含む軽い炭化水素流れと、炭素原子数が3よりも多い成分を含む重い炭化水素流れとに分離する手段、

(3) 前記第1熱交換手段内の冷却手段であって、前記軽い炭化水素流れを冷却する冷却手段、

(4) (1)の前記蒸留塔の還流として、(3)で得られる冷却された前記軽い炭化水素流れの一部を前記蒸留塔に導入する配管手段、を具備している請求項11に記載の加圧供給ガスの液化装置。

## 【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0030

【補正方法】変更

## 【補正内容】

【0030】付随的で随意の工程の多くでは、(1)部分的に凝縮した第2混合冷媒流れを分離して、中間の第2混合冷媒蒸気と中間の第2混合冷媒液とをもたらし、

(2) 中間の第2混合冷媒蒸気を冷却し、凝縮させ、随意に過冷却し、そしてフラッシュさせて、(b)の気化

する第2混合冷媒を挿入し、そして(3)中間の第2混合冷媒液を過冷却して本質的に一定の第2圧力でフラッシュさせ、第2熱交換領域において追加の寒冷を発生させる。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0035

【補正方法】変更

【補正内容】

【0035】この装置はまた、冷却された加圧供給ガスを(d)の第2熱交換領域での間接熱交換によって更に冷却して凝縮させる前に、この冷却された加圧供給ガスからメタンよりも重い炭化水素を除去し、ここで、この

冷却された加圧供給ガスが天然ガスから得られるメタンに富む供給ガスである手段であって、(1)冷却された加圧供給ガスを、更にメタンに富む塔頂流れと、メタンよりも重い成分の塔底流れとに分離する蒸留塔、(2)塔底流れを、炭素原子数が3又はそれ以下の成分を含む軽い炭化水素流れと、炭素原子数が3よりも多い成分を含む重い炭化水素流れとに分離する手段、(3)第1熱交換手段内の冷却手段であって、軽い炭化水素流れを冷却する冷却手段、(4)(1)の蒸留塔の還流として、(3)で得られる冷却された炭化水素流れの一部をこの蒸留塔に導入する配管手段、を有する手段を具備することができる。

---

フロントページの続き

(72)発明者 マーク ジュリアン ロバーツ  
アメリカ合衆国、ペンシルバニア 19529,  
ケンプトン、カナリス ドライブ 8866

(72)発明者 ラケッシュ アグラウォール  
アメリカ合衆国、ペンシルバニア 18049,  
エマウス、コモンウェルス ドライブ  
4312

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**